

DIALOG(R)File 351:Derwent WPI  
(c) 2001 Derwent Info Ltd. All rts. reserv.

013402167    \*\*Image available\*\*  
WPI Acc No: 2000-574105/\*200054\*  
XRAM Acc No: C00-171256  
XRPX Acc No: N00-424811

**Organic electroluminescence element includes organic layer with  
polymerization film of phthalocyanine compound**

Patent Assignee: FUTABA DENSHI KOGYO KK (FUTK )

Number of Countries: 001    Number of Patents: 001

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
JP 2000150146	A	20000530	JP 98313375	A	19981104	200054 B

Priority Applications (No Type Date): JP 98313375 A 19981104

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan	Pg	Main IPC	Filing Notes
JP 2000150146	A		9	H05B-033/10	

Abstract (Basic): \*JP 2000150146\* A

NOVELTY - The organic electroluminescence element has organic layer which includes a polymerization film of phthalocyanine compound chosen from predetermined group formed by ion-plating.

DETAILED DESCRIPTION - An INDEPENDENT CLAIM is also included for organic electroluminescence element manufacturing method.

USE - Organic electroluminescence element.

ADVANTAGE - The utilization factor of red-color light emission is improved.

DESCRIPTION OF DRAWING(S) - The figure shows the structure of ion-plating apparatus.

pp; 9 DwgNo 1/8

Title Terms: ORGANIC; ELECTROLUMINESCENT; ELEMENT; ORGANIC; LAYER; FILM; PHTHALOCYANINE; COMPOUND

Derwent Class: E12; L03; U12; U14; X26

International Patent Class (Main): H05B-033/10

International Patent Class (Additional): H05B-033/14; H05B-033/22

File Segment: CPI; EPI

Manual Codes (CPI/A-N): E05-L03B; L03-C04; L03-H04A

Manual Codes (EPI/S-X): U12-A01A1X; U14-J01; X26-J

Chemical Fragment Codes (M3):

\*01\* A429 A960 C710 D000 E350 M280 M320 M411 M511 M520 M530 M540 M630  
M781 M904 M905 M910 Q454 R043 R01160-K R01160-U 07541

Ring Index Numbers: ; 07541

Derwent Registry Numbers: 1160-U

Specific Compound Numbers: R01160-K; R01160-U

Key Word Indexing Terms:

\*01\* 129562-0-0-0-CL, USE



(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-150146

(P2000-150146A)

(43)公開日 平成12年5月30日(2000.5.30)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード*(参考)
H 0 5 B 33/10		H 0 5 B 33/10	3 K 0 0 7
33/14		33/14	A
33/22		33/22	D
			B

審査請求 未請求 請求項の数4 O L (全 9 頁)

(21)出願番号 特願平10-313375

(22)出願日 平成10年11月4日(1998.11.4)

(71)出願人 000201814

双葉電子工業株式会社

千葉県茂原市大芝629

(72)発明者 高橋 尚光

千葉県茂原市大芝629 双葉電子工業株式  
会社内

(72)発明者 鶴岡 誠久

千葉県茂原市大芝629 双葉電子工業株式  
会社内

(74)代理人 100067323

弁理士 西村 敬光 (外1名)

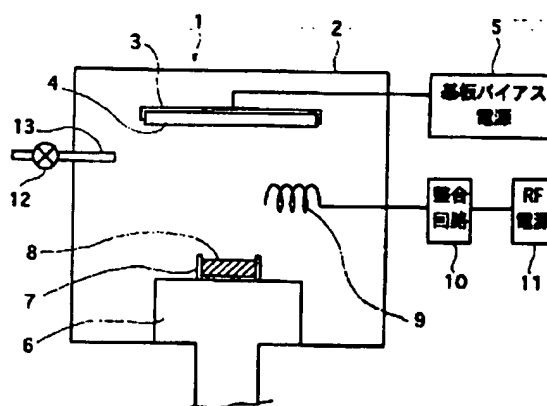
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 有機EL素子及びその製造方法

(57)【要約】

【課題】CuPcの透過率を改善して有機EL素子の有機材料に利用する。

【解決手段】真空槽2中を $10^{-5}$ Torr以下とし、ポート7を400～500℃に加熱してCuPc8を蒸発させる。この時真空槽2中にAr等のガスを導入して真空度を $10^{-1}\sim 10^{-4}$ Torr以上にし、コイル電極9に高周波電力を印加してプラズマを発生させる。基板ホルダー3に500V以下の加速電圧を印加する。プラズマ化したCuPcが基板4に向けて移動し、基板4の表面に堆積してプラズマ重合膜を生成する。CuPcのプラズマ重合膜は、単なる蒸着膜に比べて赤色領域での透過率が大幅に向上している。プラズマ重合によって結晶状態が変わり、近接するCuPc分子間の相互作用が減少し、顔料としての隠蔽力が低下したためである。発光層に赤色発光のDCMを有する有機EL素子において正孔注入層をCuPcの重合層で形成する。輝度は比較例よりも向上し、赤色の透過率が高いためにスペクトルの幅が狭くなり色純度が良くなる。



1

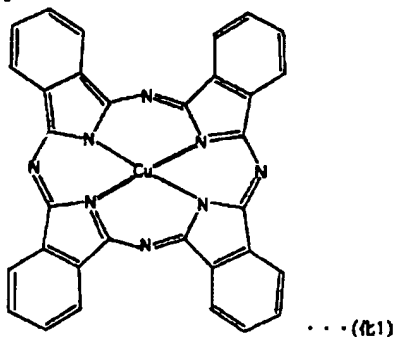
## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 少なくとも一方が透光性を有する陽極と陰極の間に発光層を含む複数の有機層を備えた有機EL素子において、

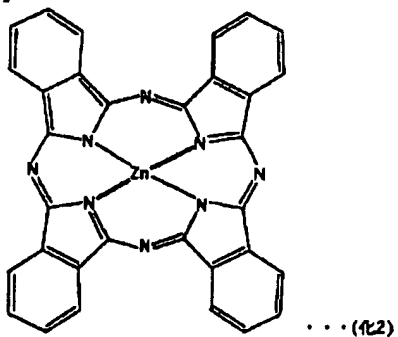
前記有機層が、イオンブレーティング法により形成したフタロシアニン化合物の重合膜を含んでいる有機EL素子。

【請求項2】 前記フタロシアニン化合物が、化学式(化1)、化学式(化2)、化学式(化3)、化学式(化4)、化学式(化5)、化学式(化6)、化学式(化7)、化学式(化8)、化学式(化9)、化学式(化10)で示す各物質の群から選択された請求項1記載の有機EL素子。

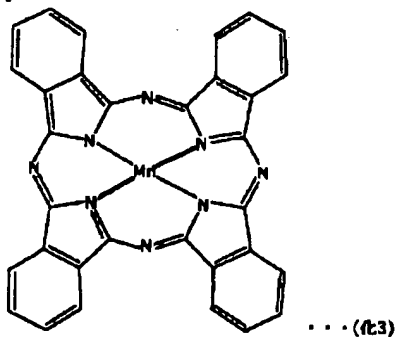
## 【化1】



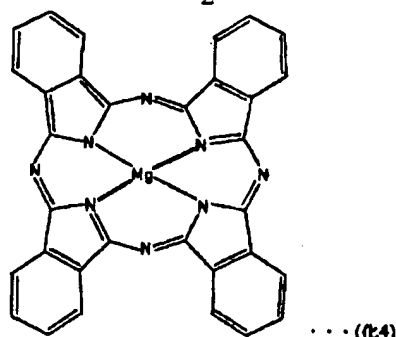
## 【化2】



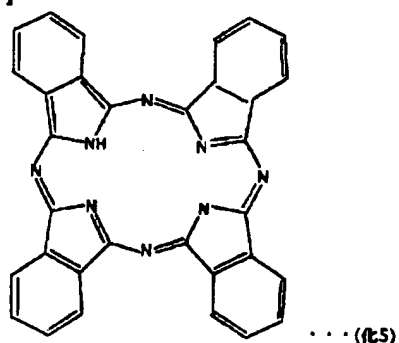
## 【化3】



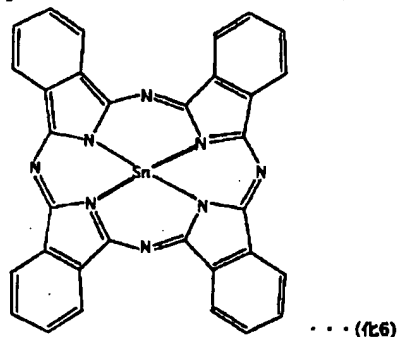
## 【化4】



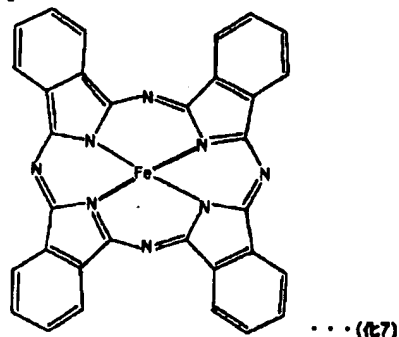
## 【化5】



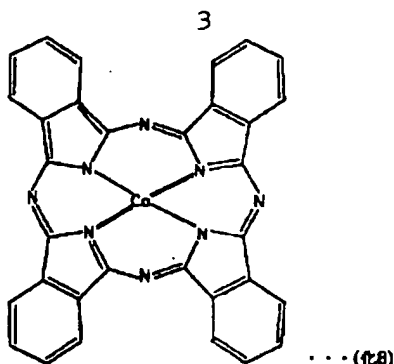
## 【化6】



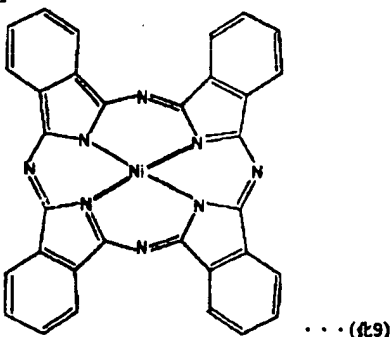
## 【化7】



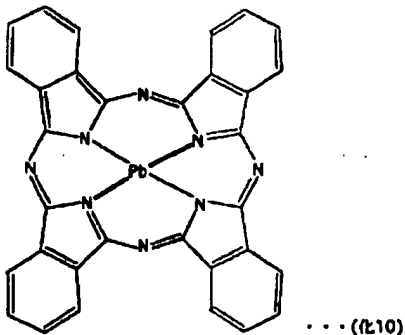
## 【化8】



【化9】



【化10】



【請求項3】 前記フタロシアニン化合物の重合膜が、電子輸送層と正孔注入層のいずれか一方として設けられている請求項1記載の有機EL素子。

【請求項4】 少なくとも一方が透光性を有する陽極と陰極の間に発光層を含む有機層を備えた有機EL素子の製造方法において、プラズマ化したフタロシアニン化合物に運動エネルギーを与えて所定の堆積面上に堆積させてフタロシアニン化合物の重合膜を形成する工程を含む有機EL素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、有機層の一部にフタロシアニン化合物の層を有する有機EL素子とその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 図8は、特開昭63-295695号に開示された有機EL素子の構造を示す断面図である。透光性を有するガラス基板100の上には、ITO等の透明電極101、有機材料からなる正孔注入層102と正孔輸送層103と発光層104、そしてMgAg等の金属電極105が、順次積層されている。ここで、正孔注入層102としてはCuPc（銅フタロシアニン）が使用されている。素子としての耐久性を向上させるために、ガラス板等からなる背面板106が接着剤107で前記ガラス基板100上に取り付けられ、前記層構造を封止している。

【0003】 透明電極101と金属電極105の間に、透明電極を正極として電圧を印加し、両電極間に電流を流すことにより発光層が発光する。この発光は、透明電極とガラス基板を通して観察される。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 前記正孔注入層102のCuPc（銅フタロシアニン）は蒸着によって形成されていた。このCuPcの蒸着膜は緑から赤色領域に吸収帯を有しており、発光層の発光に赤色成分が多く含まれる場合には発光の多くが正孔注入層で吸収されてしまうので、十分な赤色発光の輝度が得られない。このように、従来のCuPcによれば赤や緑を通しにくいので、白色の発光を得ようとした場合でも青色になってしまう。

【0005】 本発明は、フタロシアニンの有する顔料としての隠蔽力を調整して透過率を向上させ、以て発光への影響を軽減してフタロシアニンを有機層の材料として有効に利用できるようにすることを目的としている。

【0006】

【課題を解決するための手段】 請求項1に記載された有機EL素子（20, 30）は、少なくとも一方が透光性を有する陽極（22, 32）と陰極（27, 37）の間に発光層（電子輸送発光層25, 発光層35）を含む複数の有機層を備えた有機EL素子において、前記有機層が、イオンブレーティング法により形成したフタロシアニン化合物の重合膜（正孔注入層23, 電子輸送層36）を含んでいることを特徴としている。

【0007】 請求項2に記載された有機EL素子は、請求項1記載の有機EL素子（20, 30）において、前記フタロシアニン化合物が化学式（化1）～化学式（化10）で示す10の物質の群から任意に選択されたものであることを特徴としている。

【0008】 請求項3に記載された有機EL素子は、請求項1記載の有機EL素子（20, 30）において、前記フタロシアニン化合物の重合膜が、電子輸送層（36）と正孔注入層（23）のいずれか一方として設けられていることを特徴としている。

【0009】 請求項4に記載された有機EL素子（2

0, 30)の製造方法は、少なくとも一方が透光性を有する陽極(22, 32)と陰極(27, 37)の間に発光層(電子輸送発光層25, 発光層35)を含む有機層を備えた有機EL素子の製造方法において、プラズマ化したフタロシアニン化合物に運動エネルギーを与えて所定の堆積面上に堆積させてフタロシアニン化合物の重合膜(正孔注入層23, 電子輸送層36)を形成する工程を含んでいる。

【0010】

【発明の実施の形態】本例の有機EL素子は、陰極と陽極の間に挟まれた有機層の中に、イオンブレーティング法により形成したフタロシアニン化合物の重合膜があることを特徴としている。まず、イオンブレーティング法を用いたフタロシアニン化合物重合膜の製造方法を説明する。

【0011】図1は本方法に用いるイオンブレーティング装置1の図である。真空槽2は、図示しない排気手段を用いて内部を所望の真空雰囲気にすることができる。真空槽2の上部には基板ホルダー3が設けられている。基板ホルダー3は、フタロシアニン化合物重合膜を堆積させるための基板4を着脱可能に保持する。この基板ホルダー3には基板バイアス電源5が接続され、後述するプラズマを加速して基板4に引き寄せることができるよう構成されている。真空槽2の下部には、加熱手段6が設置されている。WやMo等からなるポート7内に蒸着源8を入れ、この加熱手段6上に載置して加熱すれば、蒸着源8は熱により蒸発する。真空槽2内の加熱手段6の上方側部には、コイル電極9が配置されている。コイル電極9には整合回路10を介してRF電源11が接続されており、近傍の分子にエネルギーを与えてプラズマを発生させることができる。真空槽2にはガス導入弁12を介してガス導入管13が接続されており、内部に所望の雰囲気ガスを所望の量だけ導入できるようになっている。

【0012】前記イオンブレーティング装置1を用いて基板4の表面にフタロシアニン化合物の重合膜を形成する。まず、真空槽2中の加熱手段6に、WやMoのポート7を設置する。このポート7内にCuPcを入れる。真空槽2中を $10^{-6}$ Torr以下の真空度になるように排気する。次に、加熱手段6に通電してポート7を400～500℃程度の温度に加熱し、CuPcを蒸発させる。この時、ガス導入弁12を操作して真空槽2中にAr等のガスを導入して真空度を $10^{-1}$ ～ $10^{-4}$ Torr以上にし、コイル電極9に高周波電力を印加してプラズマを発生させる。基板ホルダー3に500V以下の加速電圧を印加すると、プラズマ化したCuPcが基板ホルダー3に取り付けた基板4に向けて移動し、基板4の表面に堆積してプラズマ重合膜を生成する。

【0013】以上のようにして得られたCuPcのプラズマ重合膜における波長と透過率の関係について説明す

る。図2は、前述の工程において、加速電圧10V、高周波電力20Wの条件で生成したCuPcのプラズマ重合膜における可視部の透過率曲線である。これに対し、図3は、本工程で処理する前のCuPcの可視部の透過率曲線である。図3では、赤色光である613nm付近よりも長波長側の透過率は、これよりも短波長側に比べて略半分程度の低さになっている。図2に示すように本例のCuPcのプラズマ重合膜においては、赤色領域での透過率は図3に比べて大幅に向上している。これは、プラズマ重合によって結晶状態が変わり、近接するCuPc分子間の相互作用が減少したため、顔料としての隠蔽力が低下したためと考えられる。また、高周波電力を印加して行うイオンブレーティング法によれば、堆積したプラズマ重合膜の表面の凹凸は小さくなって平滑になり、このため発光に寄与しない無効電流が少なくなる。

【0014】次に、前述したイオンブレーティング法で形成した銅フタロシアニン化合物の重合膜を有機層に有する有機EL素子を説明する。

【0015】図4は、正孔注入層が前記銅フタロシアニン化合物の重合膜で形成されている場合の有機EL素子20である。透光性のガラス基板21の上に、 $\text{In}_2\text{O}_3$ 等の透光性の導体を蒸着し、フォトリソグラフィ法により透明電極22を形成する。ガラス基板21をUV $\text{O}_3$ 等によって洗浄する。

【0016】透明電極22の上に正孔注入層23を形成する。本例では、正孔注入層23として、銅フタロシアニン化合物のプラズマ重合膜を、前述したイオンブレーティング法を用いて高周波電力40Wで生成する。膜厚は10～100nmとする。

【0017】正孔注入層23の上に正孔輸送層24として $\alpha$ -NPDを10～100nmの膜厚で蒸着する。

【0018】正孔輸送層24の上に電子輸送・発光層25を設ける。本例の電子輸送・発光層25は、 $\text{Alq}_3$ と、600nm付近に発光のピークを有する赤色発光蛍光体であるDCMとを、10～100nmの膜厚で共蒸着して形成する。この場合、DCMは $\text{Alq}_3$ の0.5～3%とする。

【0019】電子輸送・発光層25の上に電子注入層26としてLiF膜を0.5～1nmの膜厚で蒸着する。

【0020】電子注入層26の上に陰極27としてAlを50～200nmの膜厚で蒸着する。

【0021】以上説明した有機層が大気にさらされないように、ドライ $\text{N}_2$ 、ドライAr、ドライ空気等の雰囲気中でガラス基板21上に金属容器・ガラス容器・樹脂容器等の容器部28を接着剤29で固着する。

【0022】本例の有機EL素子20と比較するために、イオンブレーティング法によらないCuPc、即ち高周波電力0Wで単に蒸着したCuPcを正孔注入層とする有機EL素子も製作した。CuPc以外は上述したのと同じ構造である。即ち、本例の有機EL素子は、

正孔注入層23がCuPcのプラズマ重合膜であるが、比較例の正孔注入層はCuPcの単なる蒸着膜である。

【0023】図5は、本例と比較例の電流密度-輝度特性を示すグラフである。本例の電流に対する輝度は比較例よりも向上している。

【0024】図6は、本例と比較例の波長-強度特性を示すグラフである。本例と比較例の素子はDCMによって赤色発光を行うが、実線で示す本例は赤色の透過率が高いためにスペクトルの幅が狭くなり、破線で示す比較例に比べて色純度が良くなっている。

【0025】次に、本例の銅フタロシアニン化合物の重合膜を有機EL素子の他の例を説明する。図7は、前記銅フタロシアニン化合物の重合膜を電子輸送層に使用した有機EL素子30の断面図である。

【0026】ガラス基板31の上には、ITO等の透光性の導電材料で陽極32が形成されている。陽極32の上には、正孔注入層33、正孔輸送層34、発光層35、そして電子輸送層36が順次積層して形成されている。本例では、前記電子輸送層36が前記銅フタロシアニン化合物の重合膜で構成されている。そして、前記電子輸送層36の上に陰極37が形成されている。図示しないが、図4に示した例と同様に、ガラス基板31の上に容器部を封着して有機層を保護してもよい。

【0027】本例によれば、発光層35から前方に出た光は、矢印Aに示すように、正孔輸送層34と正孔注入層33と陽極32を通過してガラス基板31から外に照射される。発光層35から後方に出た光は、矢印Bに示すように、電子輸送層36を通過して陰極37に達し、そこで反射してもう一度電子輸送層36を通過し、その後正孔輸送層34と正孔注入層33と陽極32を通過してガラス基板31から外に照射される。よって、陰極37側に進んだ光は電子輸送層36を2回通過するため、層に着色があると光の減衰が大きくなってしまふ。しかしながら、本例によれば、電子輸送層36を構成する銅フタロシアニン化合物は、赤色の透過率の低い単なる蒸着膜ではなく、イオンブレイティング法によって作られた透過率の高いプラズマ重合膜である。よって、有機EL素子の発光層の光の取り出しが効率的になるという効果がある。

【0028】以上説明した例では、イオンブレイティング法によってプラズマ重合膜とされたフタロシアニン化合物はCu化合物であったが、その外に前記化学式(化1)～(化10)に記載したフタロシアニン化合物も同

様の方法で製造することができ、有機EL素子の有機層の材料として前述した例と同様に使用できる。

【0029】

【発明の効果】本発明によれば、有機EL素子の有機層の一部に用いられるフタロシアニン化合物を、イオンブレイティング法によりプラズマ重合膜として形成した。このため、プラズマ重合膜となったフタロシアニン化合物は可視光赤色部の透過率が向上し、赤色発光蛍光体の発光が吸収されにくくなり、赤色発光の利用率が向上する。また、このフタロシアニンのプラズマ重合膜の表面は、通常の蒸着膜よりも平滑になるため、発光に寄与しない無効電流が少なくなるという効果がある。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施の形態において使用されるイオンブレイティング装置1の構造を模式的に示す図である。

【図2】加速電圧10V、高周波電力20Wの条件下、イオンブレイティング法により生成したCuPcのプラズマ重合膜における可視部の透過率曲線である。

【図3】通常の蒸着で生成したCuPc膜の可視部の透過率曲線である。

【図4】正孔注入層が本例の銅フタロシアニン化合物の重合膜で形成されている有機EL素子の断面図である。

【図5】本例と比較例の電流密度-輝度特性を示すグラフである。

【図6】本例と比較例の波長-強度特性を示すグラフである。

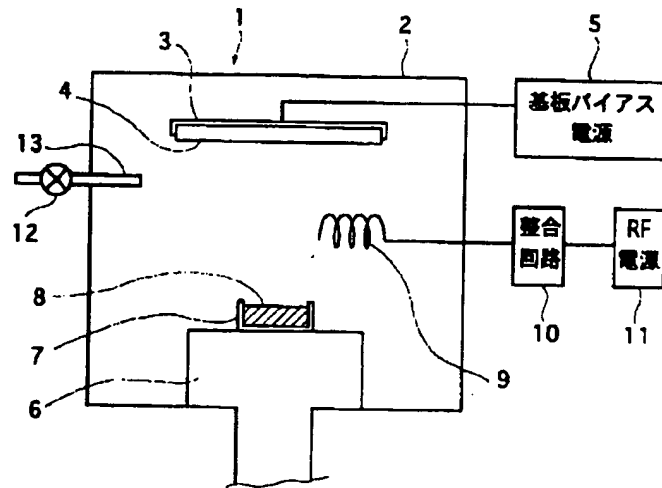
【図7】本例の銅フタロシアニン化合物の重合膜を電子輸送層に使用した有機EL素子の断面図である。

【図8】特開昭63-295695号にて開示された有機EL素子の構造を示す断面図である。

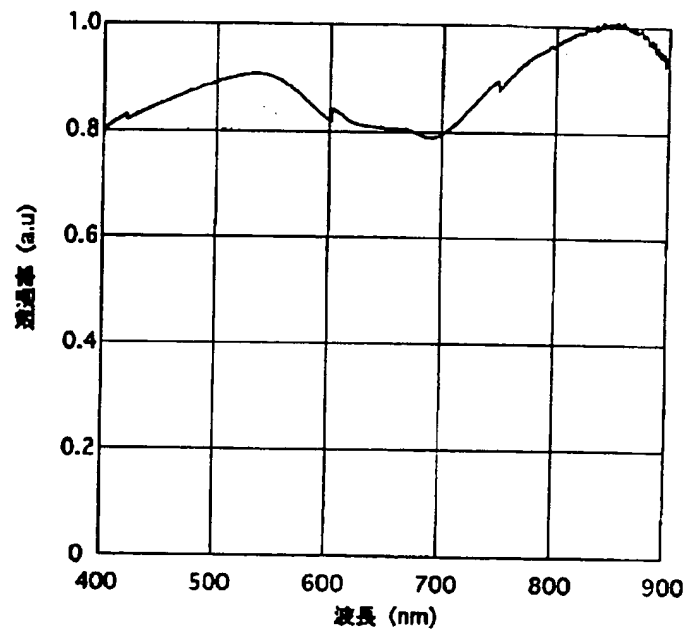
【符号の説明】

- 1 イオンブレイティング装置
- 20, 30 有機EL装置
- 22 陽極としての透明電極
- 23 フタロシアニン化合物の重合膜からなる正孔注入層
- 25 電子輸送発光層
- 27, 37 陰極
- 32 陽極
- 35 発光層
- 36 フタロシアニン化合物の重合膜からなる電子輸送層

【図1】

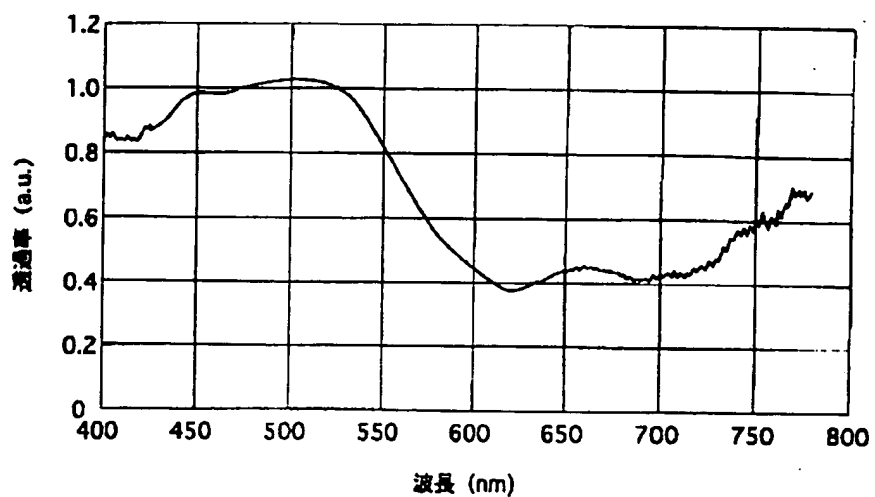


【図2】

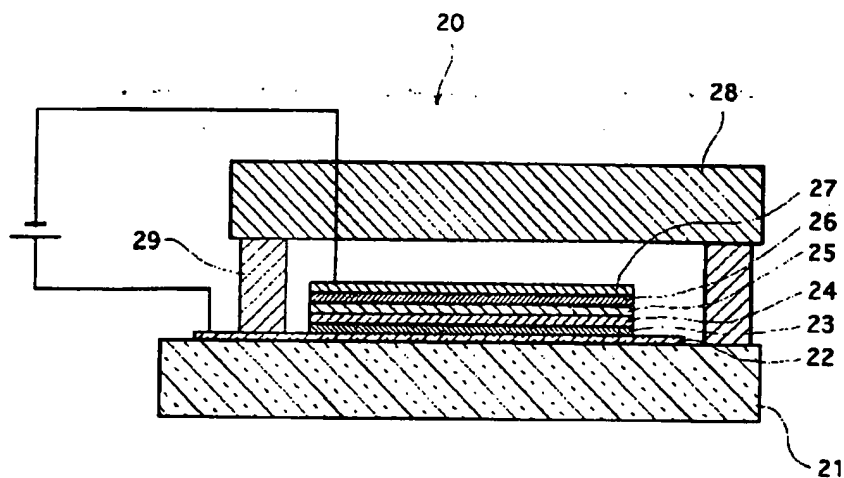




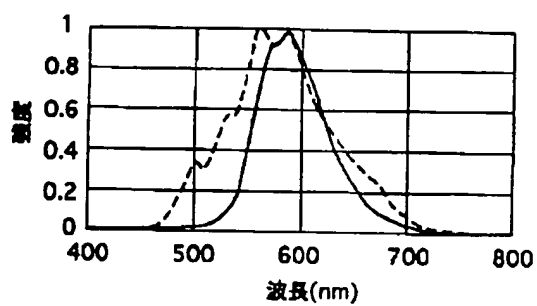
【図3】



【図4】

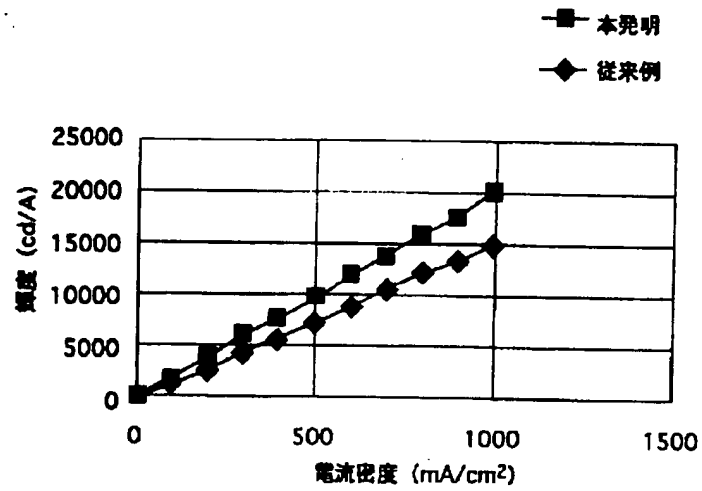


【図6】

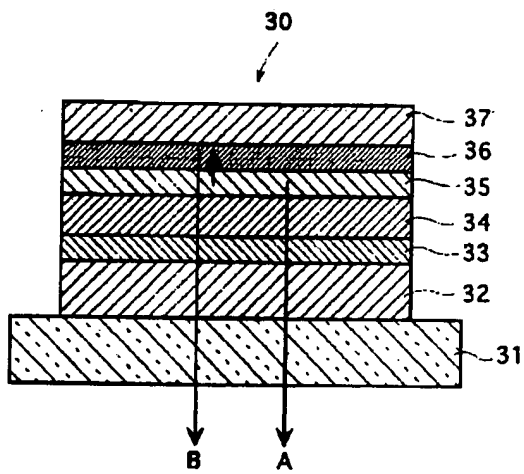


—— 本発明  
 ---- 従来例

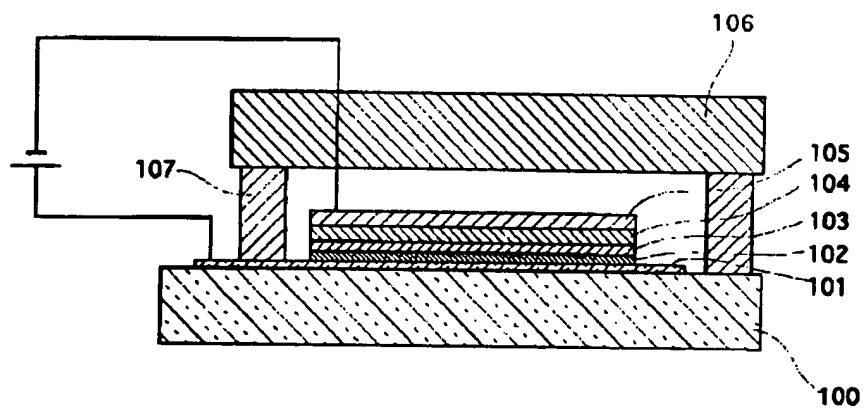
【図5】



【図7】



【図8】



## フロントページの続き

(72)発明者 福田 辰男  
千葉県茂原市大芝629 双葉電子工業株式  
会社内

(72)発明者 小林 範久  
千葉県千葉市稲毛区長沼原町317-1-8  
-704

(72)発明者 田中 豊英  
千葉県千葉市稲毛区天台6-9-1

Fターム(参考) 3K007 AB03 AB04 AB06 CB01 DA01  
DB03 EB00 FA01

